

【公報種別】特許法第 17 条の 2 の規定による補正の掲載

【部門区分】第 3 部門第 3 区分

【発行日】平成 23 年 2 月 17 日 (2011.2.17)

【公表番号】特表 2010-514897 (P2010-514897A)

【公表日】平成 22 年 5 月 6 日 (2010.5.6)

【年通号数】公開・登録公報 2010-018

【出願番号】特願 2009-544060 (P2009-544060)

【国際特許分類】

C 0 8 L 9/00 (2006.01)

C 0 8 K 5/548 (2006.01)

C 0 8 K 3/04 (2006.01)

C 0 8 K 3/36 (2006.01)

【 F I 】

C 0 8 L 9/00

C 0 8 K 5/548

C 0 8 K 3/04

C 0 8 K 3/36

【手続補正書】

【提出日】平成 22 年 12 月 21 日 (2010.12.21)

【手続補正 1】

【補正対象書類名】特許請求の範囲

【補正対象項目名】全文

【補正方法】変更

【補正の内容】

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

あらかじめ形成される、自由流動性充填剤組成物であって、

a) 充填剤と；

b) 一般式：

$$[Y^1 R^1 S_x -]_m [G^1 (R^2 Si X^1 X^2 X^3)_a]_n [G^2]_o [R^3 Y^2]_p$$

を有したシラン化コアポリスルフィドである、第一のシラン

〔式中、

ここで G^1 の各々が、一般式：

$$[(CH_2)_b -]_c R^4 [- (CH_2)_d S_x -]_e ;$$

によって表されるポリスルフィド基を含む、1 から約 30 の炭素原子を持つ多価の炭化水素種から独立して選択され、

G^2 の各々が、一般式：

$$[(CH_2)_b -]_c R^5 [- (CH_2)_d S_x -]_e ;$$

によって表されるポリスルフィド基を含む、1 から約 30 の炭素原子の多価の炭化水素種から独立して選択され、

R^1 および R^3 の各々が、1 から約 20 の炭素原子を持つ二価の炭化水素フラグメントから独立して選択され；

Y^1 および Y^2 の各々が、シリル ($- Si X^1 X^2 X^3$)、水素、アルコキシ ($- OR^6$)、カルボン酸、エステル ($- C(=O)OR^6$)〔ここで、 R^6 が、1 から 20 の炭素原子を有した一価の炭化水素基である〕からなるものから独立して選択され；

R^2 の各々が、 $-(CH_2)_f -$ で表される直鎖炭化水素であり；

R^4 の各々が、 $a + c + e - 1$ 個の水素が置き換えられた環状の、分岐の、および直鎖のアルキル、アルケニル、アルキニル、アリール、およびアラルキル基を含む、 $a + c +$

e の合計に等しい水素原子の置換によって得られる 1 から約 28 の炭素原子の多価の炭化水素フラグメント、または、1 から 27 の炭素原子の多価のヘテロカーボンフラグメントから独立して選択され；

R^5 の各々が、 $c + e - 1$ 個の水素が置き換えられた環状の、分岐の、および直鎖のアルキル、アルケニル、アルキニル、アリール、およびアラルキル基を含む、 $c + e$ の合計に等しい水素原子の置換によって得られる 1 から約 28 の炭素原子の多価の炭化水素フラグメント、または、1 から 27 の炭素原子の多価のヘテロカーボンフラグメントから独立して選択され；

X^1 の各々が、 $-Cl$ 、 $-Br$ 、 $-OH$ 、 $-OR^6$ 、および $R^6C(=O)O-$ からなる群から独立して選択され、ここで R^6 は、1 から 20 の炭素原子を有した任意の一価の炭化水素基であり；

X^2 および X^3 の各々が、水素、 R^6 [ここで、 R^6 が、1 から 20 の炭素原子を有した一価の炭化水素基である]、 X^1 [ここで、 X^1 が、 $-Cl$ 、 $-Br$ 、 $-OH$ 、 $-OR^6$ 、および $R^6C(=O)O-$ からなる群から独立して選択され、式中、 R^6 は、1 から 20 の炭素原子を有した一価の炭化水素基である]、および、シラノールの縮合によって生じる $-OSi$ 含有基からなる群から独立して選択され；

下付き文字 a、b、c、d、e、f、m、n、o、p、および x が、a、c および e が 1 から約 3；b が 1 から約 5；d が 1 から約 5；f が 0 から約 5；m および p が 1 から約 100；n が 1 から約 15；o が 0 から約 10；ならびに x が 1 から約 10、によって独立して与えられる]と；

そして任意選択で、

c) 一般式：

$[X^1X^2X^3SiR^1S_xR^3SiX^1X^2X^3]$

を有する第二のシラン [式中、 R^1 および R^3 の各々は、一つの水素原子がシリル基 ($-SiX^1X^2X^3$) によって置換されている分岐のおよび直鎖の、アルキル、アルケニル、アルキニル、アリール、もしくはアラルキル基を含む、1 から約 20 の炭素原子を持つ二価の炭化水素フラグメントから独立して選択され、 X^1 が、 $-Cl$ 、 $-Br$ 、 $-OH$ 、 $-OR^6$ 、および $R^6C(=O)O-$ からなる群から独立して選択され、ここで R^6 が、分岐のもしくは直鎖の、アルキル、アルケニル、アリール、もしくはアラルキル基を含む、1 から 20 の炭素原子を持つ一価の炭化水素基であり、 X^2 および X^3 が、水素、 R^6 、 X^1 、およびシラノールの縮合によって生じる $-OSi$ 含有基からなる群から独立して選択される]とを、含有する、組成物。

【請求項 2】

前記充填剤が、シランに関して化学的に不活性である、請求項 1 に記載の自由流動性充填剤組成物。

【請求項 3】

前記充填剤が、前記シランに対して化学的に反応性であり、シランが前記化学的に反応性の充填剤に対して化学結合する、請求項 1 に記載の自由流動性充填剤組成物。

【請求項 4】

前記充填剤がカーボンブラックである、請求項 2 に記載の自由流動性充填剤組成物。

【請求項 5】

前記化学的に反応性の充填剤が、メタルヒドロキシ表面機能性を有する、請求項 3 に記載の自由流動性充填剤組成物。

【請求項 6】

前記化学的に反応性の充填剤が、シリカ物質である、請求項 5 に記載の自由流動性充填剤組成物。

【請求項 7】

前記シリカ物質が、シリカである、請求項 6 に記載の自由流動性充填剤組成物。

【請求項 8】

前記充填剤が、前記シランに関して不活性である充填剤と、シランに対して化学的に反

応性であってそれと化学結合する充填剤との混合物である、請求項 1 に記載の自由流動性充填剤組成物。

【請求項 9】

前記不活性な充填剤がカーボンブラックであり、化学的に反応性の充填剤がシリカである、請求項 8 に記載の自由流動性充填剤組成物。

【請求項 10】

前記シラン化コアポリスルフィドが、2 - トリエトキシシリル - 1, 3 - ビス - (3 - トリエトキシシリル - 1 - プロピルテトラチオ)プロパン、4 - (2 - トリエトキシシリル - 1 - エチル) - 1, 2 - ビス - (13 - トリエトキシシリル - 3, 4, 5, 6 - テトラチアトリデシル)シクロヘキサン; 4 - (2 - トリエトキシシリル - 1 - エチル) - 1, 2 - ビス(13 - トリエトキシシリル - 3, 4, 5, 6 - テトラチアトリデシル)シクロヘキサン; 4 - (2 - ジエトキシメチルシリル - 1 - エチル) - 1, 2 - ビス - (13 - トリエトキシシリル - 3, 4, 5, 6 - テトラチアトリデシル)シクロヘキサン; 4 - (2 - トリエトキシシリル - 1 - エチル) - 1, 2 - ビス - (10 - トリエトキシシリル - 3, 4, 5, 6, 7 - ペンタチアデシル)シクロヘキサン; 1 - (2 - トリエトキシシリル - 1 - エチル) - 2, 4 - ビス - (10 - トリエトキシシリル - 3, 4, 5, 6, 7 - ペンタチアデシル)シクロヘキサン; 1 - (2 - トリエトキシシリル - 1 - エチル) - 2, 4 - ビス - (9 - トリエトキシシリル - 3, 4, 5, 6 - テトラチアノニル)シクロヘキサン; 2 - (2 - トリエトキシシリル - 1 - エチル) - 1, 4 - ビス - (9 - トリエトキシシリル - 3, 4, 5, 6 - テトラチアノニル)シクロヘキサン; 4 - (2 - トリエトキシシリル - 1 - エチル) - 1, 2 - ビス - (8 - トリエトキシシリル - 3, 4, 5 - トリチアオクチル)シクロヘキサン; 2 - (2 - トリエトキシシリル - 1 - エチル) - 1, 4 - ビス - (8 - トリエトキシシリル - 3, 4, 5 - トリチアオクチル)シクロヘキサン; 4 - (2 - トリエトキシシリル - 1 - エチル) - 1, 2 - ビス - (7 - トリエトキシシリル - 3, 4 - ジチアヘプチル)シクロヘキサン; 2 - (2 - トリエトキシシリル - 1 - エチル) - 1, 4 - ビス - (7 - トリエトキシシリル - 3, 4 - ジチアヘプチル)シクロヘキサン; 1 - (2 - トリエトキシシリル - 1 - エチル) - 2, 4 - ビス - (7 - トリエトキシシリル - 3, 4 - ジチアヘプチル)シクロヘキサン; 2 - (2 - トリエトキシシリル - 1 - エチル) - 1 - (7 - トリエトキシシリル - 3, 4 - ジチアヘプチル) - 2 - (8 - トリエトキシシリル - 3, 4, 5 - トリチアオクチル)シクロヘキサン; 4 - (2 - トリエトキシシリル - 1 - エチル) - 1, 2 - ビス - (9 - トリエトキシシリル - 3, 4, 5, 6 - テトラチアノニル)シクロヘキサン; 4 - (2 - トリエトキシシリル - 1 - エチル) - 1, 2 - ビス - (9 - トリエトキシシリル - 3, 4, 5, 6 - テトラチアノニル)ベンゼン; ビス - [2 - [4 - (2 - トリエトキシシリル - 1 - エチル) - 3 - (9 - トリエトキシシリル - 3, 4, 5, 6 - テトラチアノニル)シクロヘキシル]エチル]テトラスルフィド; ビス - [2 - [4 - (2 - トリエトキシシリル - 1 - エチル) - 3 - (9 - トリエトキシシリル - 3, 4, 5, 6 - テトラチアノニル)シクロヘキシル]エチル]トリスルフィド; ビス - [2 - [4 - (2 - トリエトキシシリル - 1 - エチル) - 3 - (7 - トリエトキシシリル - 3, 4 - ジチアヘプチル)シクロヘキシル]エチル]ジスルフィド; ビス - [2 - [4 - (2 - トリエトキシシリル - 1 - エチル) - 3 - (9 - トリエトキシシリル - 3, 4, 5, 6 - テトラチアノニル)フェニル]エチル]テトラスルフィド; ビス - [2 - [4 - (2 - トリエトキシシリル - 1 - エチル) - 3 - (9 - トリエトキシシリル - 3, 4, 5, 6 - テトラチアノニル)ヘキシル]エチル]トリスルフィド; ビス - [2 - [4 - (2 - トリエトキシシリル - 1 - エチル) - 3 - (7 - トリエトキシシリル - 3, 4 - ジチアヘプチル)シクロヘキシル]エチル]ジスルフィド、およびそれらの混合物からなる群から選択される、請求項 1 に記載の自由流動性充填剤組成物。

【請求項 11】

前記充填剤が、シランに関して化学的に不活性である、請求項 10 に記載の自由流動性充

填剤組成物。

【請求項 1 2】

前記充填剤が、前記シランに対して化学的に反応性であり、シランが前記化学的に反応性の充填剤に対して化学結合する、請求項 1 0 に記載の自由流動性充填剤組成物。

【請求項 1 3】

前記充填剤がカーボンブラックである、請求項 1 1 に記載の自由流動性充填剤組成物

【請求項 1 4】

前記化学的に反応性の充填剤が、メタルヒドロキシ表面機能性を有する、請求項 1 2 に記載の自由流動性充填剤組成物。

【請求項 1 5】

前記化学的に反応性の充填剤が、シリカ物質である、請求項 1 4 に記載の自由流動性充填剤組成物。

【請求項 1 6】

前記シリカ物質が、シリカである、請求項 1 5 に記載の自由流動性充填剤組成物。

【請求項 1 7】

前記充填剤が、前記シランに関して不活性である充填剤と、シランに対して化学的に反応性であってそれと化学結合する充填剤との混合物である、請求項 1 0 に記載の自由流動性充填剤組成物。

【請求項 1 8】

前記不活性な充填剤がカーボンブラックであり、化学的に反応性の充填剤がシリカである、請求項 1 7 に記載の自由流動性充填剤組成物。

【請求項 1 9】

約 3 0 から約 9 9 . 9 重量パーセントの充填剤を含有し、組成物のバランスが、第一のシラン (b) または第一のシラン (b) と第二のシラン (c) との混合物である、請求項 1 に記載の自由流動性充填剤組成物。

【請求項 2 0】

約 5 0 から約 9 0 重量パーセントの充填剤を含有し、組成物のバランスが、第一のシラン (b) または第一のシラン (b) と第二のシラン (c) との混合物である、請求項 1 に記載の自由流動性充填剤組成物。

【請求項 2 1】

約 3 0 から約 9 9 . 9 重量パーセントの化学的に不活性な充填剤を含有し、組成物のバランスが、第一のシラン (b) または第一のシラン (b) と第二のシラン (c) との混合物である、請求項 1 1 に記載の自由流動性充填剤組成物。

【請求項 2 2】

約 5 0 から約 9 0 重量パーセントの化学的に不活性な充填剤を含有し、組成物のバランスが、第一のシラン (a) または第一のシラン (b) と第二のシラン (c) との混合物である、請求項 1 1 に記載の自由流動性充填剤組成物。

【請求項 2 3】

約 8 0 から約 9 9 . 9 重量パーセントの化学的に反応性の充填剤を含有し、組成物のバランスが、第一のシラン (b) または第一のシラン (b) と第二のシラン (c) との混合物である、請求項 1 2 に記載の自由流動性充填剤組成物。

【請求項 2 4】

約 9 0 から約 9 9 . 5 重量パーセントの化学的に反応性の充填剤を含有し、組成物のバランスが、第一のシラン (b) または第一のシラン (b) と第二のシラン (c) との混合物である、請求項 1 2 に記載の自由流動性充填剤組成物。

【請求項 2 5】

約 5 から約 8 5 重量パーセントの化学的に不活性な充填剤と約 1 5 から約 9 5 重量パーセントの化学的に反応性の充填剤、そして、約 0 . 1 から約 1 9 重量パーセントの、第一のシラン (b) または第一のシラン (b) と第二のシラン (c) との混合物を含有する、請求項 1 7 に記載の自由流動性充填剤組成物。

【請求項 26】

約 40 から約 5 重量パーセントの化学的に不活性な充填剤と約 60 から約 95 重量パーセントの化学的に反応性の充填剤、そして、約 0.1 から約 20 重量パーセントの、第一のシラン (b) または第一のシラン (b) と第二のシラン (c) との混合物を含有する、請求項 17 に記載の自由流動性充填剤組成物。

【請求項 27】

前記微粒子充填剤が、約 15 から約 95 重量パーセントのシリカ物質と約 5 から約 85 重量パーセントのカーボンブラック、そして、約 0.1 から約 70 重量パーセントの、第一のシラン (b) または第一のシラン (b) と第二のシラン (c) との混合物を含有する、請求項 1 に記載の自由流動性充填剤組成物。

【請求項 28】

前記微粒子充填剤が、約 60 から約 95 重量パーセントのシリカ物質と約 40 から約 5 重量パーセントのカーボンブラック、そして、約 0.1 から約 70 重量パーセントの、第一のシラン (b) または第一のシラン (b) と第二のシラン (c) との混合物を含有する、請求項 1 に記載の自由流動性充填剤組成物。

【請求項 29】

前記シランが、重量比が約 0.43 対約 99 である、第一のシラン (b) と第二のシラン (c) との混合物である、請求項 19 に記載の自由流動性充填剤組成物。

【請求項 30】

前記シランが、重量比が約 1 対約 19 である、第一のシラン (b) と第二のシラン (c) との混合物である、請求項 19 に記載の自由流動性充填剤組成物。

【請求項 31】

ラバー組成物であって、少なくとも一つのラバーと、請求項 1、2、3、8、9、10、11、12、17、19、21、23 および 25 のいずれか一項に記載の自由流動性充填剤組成物の少なくとも一つ、硬化剤、そして、任意選択で、硫黄化合物、活性化剤、遅延剤、促進剤、加工添加剤、オイル、可塑剤、粘着付与樹脂、シリカ、充填剤、顔料、脂肪酸、酸化亜鉛、ワックス、坑酸化剤およびオゾン劣化防止剤、素練り促進剤、強化剤、およびその混合物からなる群から選択される、添加剤を含有する、組成物。

【請求項 32】

前記ラバー組成物が、共役ジエンホモポリマーおよび共役ジエンコポリマー、少なくとも一つの共役ジエンおよび芳香族ビニル化合物の共重合体、およびそれらの混合物からなる群から選択される、少なくとも一つの硫黄加硫可能なラバーである、請求項 31 に記載のラバー組成物。

【請求項 33】

前記ラバー組成物が、少なくとも一つの天然ラバーである、請求項 31 に記載のラバー組成物。

【請求項 34】

前記ラバー組成物が、少なくとも一つのエマルジョン重合由来のラバーである、請求項 31 に記載のラバー組成物。

【請求項 35】

前記ラバー組成物が、少なくとも一つの溶液重合由来のラバーである、請求項 31 に記載のラバー組成物。

【請求項 36】

前記エマルジョン重合由来のラバーが、スチレン/ブタジエンラバー、エマルジョン製造スチレン/ブタジエンラバー、エチレン-プロピレンコポリマーおよびエチレン-プロピレン ter-ポリマー、ブタジエン/アクリロニトリルラバー、ポリブタジエンラバー、ならびにスチレン/ブタジエン/アクリロニトリルラバーからなる群から選択されるような、少なくとも一つのラバーである、請求項 31 に記載のラバー組成物。

【請求項 37】

前記溶液重合由来ラバーが、約 5 から約 50 パーセントのビニル含量を含むスチレン/

ブタジエンラバーである、請求項 3 5 に記載のラバー組成物。

【請求項 3 8】

前記溶液重合由来ラバーが、約 9 から約 3 6 パーセントのビニル含量を含むスチレン / ブタジエンラバーである、請求項 3 7 に記載のラバー組成物。

【請求項 3 9】

前記共役ジエンが、イソプレン、1, 3 - ブタジエン、スチレン、3 - メチルスチレン、ならびにそれらの混合物からなる群から選択される、請求項 3 5 に記載のラバー組成物。

【請求項 4 0】

前記ポリブタジエンが約 9 0 重量パーセントであり、シス - 1, 4 ブタジエン形態である、請求項 3 5 に記載のラバー組成物。

【請求項 4 1】

前記ラバーが、シス - 1, 4 - ポリイソプレンラバー、エマルション重合製造スチレン / ブタジエンコポリマーラバー、有機溶液重合製造スチレン / ブタジエンラバー、3, 4 - ポリイソプレンラバー、イソプレン / ブタジエンラバー、スチレン / イソプレン / ブタジエン t e r - ポリマーラバー、シス - 1, 4 - ポリブタジエン、中ビニルポリブタジエンラバー（ここで、前記中ビニルポリブタジエンラバーは約 3 5 から 5 0 重量パーセントのビニルを含む）、高ビニルポリブタジエンラバー（ここで、前記高ビニルポリブタジエンラバーは約 5 0 から 7 5 重量パーセントのビニルを含む）、スチレン / イソプレンコポリマー、エマルション重合製造スチレン / ブタジエン / アクリロニトリル t e r - ポリマーラバー、およびブタジエン / アクリロニトリルコポリマーラバーからなる群から選択される、請求項 3 1 に記載のラバー組成物。

【請求項 4 2】

前記エマルション重合由来のスチレン / ブタジエンが、約 2 0 から約 2 8 重量パーセントのスチレン含量を持つ、請求項 3 4 に記載のラバー組成物。

【請求項 4 3】

前記エマルション重合由来のスチレン / ブタジエンが、約 3 0 から約 4 5 重量パーセントのスチレン含量を含む、請求項 4 2 に記載のラバー組成物。

【請求項 4 4】

前記エマルション重合由来のスチレン / ブタジエン / アクリロニトリル t e r - ポリマーラバーが、約 2 から約 4 0 重量パーセントのアクロニトリルを含む、請求項 4 1 に記載のラバー組成物。